

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-315770

(43)Date of publication of application : 06.11.1992

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 03-082316

(71)Applicant : TOSHIBA CORP

(22)Date of filing : 15.04.1991

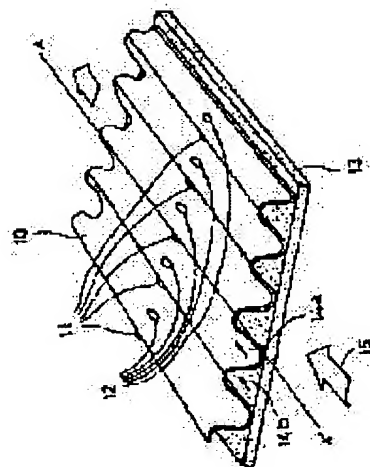
(72)Inventor : AKASAKA YOSHIHIRO
OZU HIDEYUKI
TATEISHI HIROSHI
NAKAGAWA KAZUAKI

(54) MOLTEN CARBONATE FUEL CELL

(57)Abstract:

PURPOSE: To uniform the gas concentration and temperature distribution of an electrode surface so as to make it easy to process a molten carbonate fuel cell during manufacture by providing openings each of which connects a separator side passageway to an electrode side passageway, and blocking that portion of the separator side gas passageway which is located behind the openings.

CONSTITUTION: Openings 11,12 of diameter 2mm ϕ are provided in a position 50cm away from gas-passageway inlets provided at both side faces of the corrugated projecting portion of a passageway plate 10, and the outlet of a gas passageway 14b provided on the side of a separator 13 is blocked. When fed in the direction indicated by the arrow, fuel gas is first allowed to flow through a fuel-electrode side gas passageway 14a partitioned by the plate 10, a fuel electrode and the separator 13 and through a separator side passageway 14b, and hydrogen is consumed inside the passageway 14a. Therefore, water and carbon dioxide are generated from the electrode surface and hydrogen concentration is gradually decreased, but since the gas allowed to flow through the passageway 14b is allowed out of the openings 11,12 at a portion 50cm away from the fuel gas inlets and flows through the passageway 4a, the concentration of the hydrogen gas is raised again. Gas concentration and current density on the electrode surface are thereby uniformed so as to achieve high performance of a molten carbonate fuel cell and to facilitate the manufacture of the fuel cell.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's
decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-315770

(43) 公開日 平成4年(1992)11月6日

(51) Int.Cl.⁵

H 0 1 M 8/02

識別記号

庁内整理番号

R 9062-4K

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平3-82316

(22) 出願日 平成3年(1991)4月15日

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

(72) 発明者 赤坂 芳浩

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株

式会社東芝総合研究所内

(72) 発明者 大図 秀行

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株

式会社東芝総合研究所内

(72) 発明者 立石 浩史

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株

式会社東芝総合研究所内

(74) 代理人 弁理士 則近 憲佑

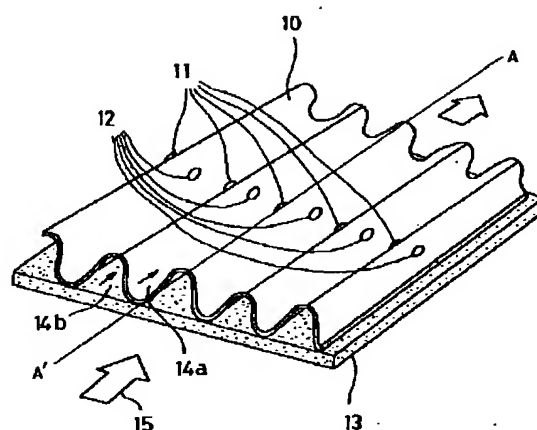
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熔融炭酸塩型燃料電池

(57) 【要約】

【目的】 熔融炭酸塩型燃料電池において、電極反応に関与するガスのガス流路構造を改善することにより、電流密度不均一分布を改善し、電池性能の向上を図り、また、従来のガス流路構造に比べて製造上有利なガス流路構造を持つ熔融炭酸塩型燃料電池を提供する事を目的とする。

【構成】 熔融炭酸塩型燃料電池において、流路板の、ガス流路入口から所望距離離れた位置にセパレータ側の流路と電極側の流路をつなぐ開孔部を設け、かつガスの流れる方向において開孔部より後方のセパレータ側のガス流路を閉塞することにより、従来セパレータ側のガス流路を流れ電極反応に関与していなかったガスを電極側流路に導入する。



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料極と、前記燃料極に対向する酸化剤極と、前記燃料極と前記酸化剤極との間に介在する電解質板とを備える複数の単位セルと；前記単位セルを積層する際に各単位セル間に介在するセパレータと；前記セパレータと対向する電極と前記セパレータの間にガス流路を形成し、前記セパレータ側のガス流路と電極側のガス流路を分離する流路板とを備える溶融炭酸塩型燃料電池において、前記流路板がセパレータ側のガス流路と電極側のガス流路をつなぐ開孔部を有し、かつ、ガス流れ方向に対しセパレータ側のガス流路の前記開孔部より後方が閉塞されていることを特徴とする溶融炭酸塩型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【発明の目的】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、ガス流路構造を改善し、電池性能を向上した溶融炭酸塩型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】 図10に溶融炭酸塩型燃料電池の基本構成を示す。図10において、1は燃料極（陰極）、2は酸化剤極（陽極）である。また、これら燃料極1と酸化剤極2の間に電解質板3が配置されている。電解質板3は、電解質を保持している。これらの燃料極1と、酸化剤極2と、電解質板3とを単位セルとし、複数の単位セルがセパレータ4を挟んで積層されている。

【0003】 電解質板3に上面に配置された燃料極1は、電解質板3の縁部から所望距離隔てて位置している。電解質板3とセパレータ4の間で陰極1が存在しない部分にはエッジシール板5aが配置されている。燃料極1とセパレータ4の間には集電板である孔開き板6a、および流路板7aが、燃料極1側から順次積層されている。

【0004】 電解質板3の下面に配置された酸化剤極2は、電解質板3の縁部から所望距離隔てて位置している。電解質板3とセパレータ4の間で酸化剤極2が存在しない部分には、エッジシール板5bが配置されている。酸化剤極2とセパレータ4の間には集電板である孔開き板6b、および、流路板7bが、酸化剤極2側から順次積層されている。

【0005】 流路板7aおよび7bは、波状板であり、セパレータ4と燃料極1または、酸化剤極2の間にガス流路を形成し、各々セパレータ側のガス流路と電極側のガス流路を分離している。上記のような複数の単位セルが積層されたスタック発電要素は、ハウジング内に収納されている。

【0006】 燃料ガス（ H_2 、 CO_2 ）は、矢印8に示す方向に供給され、流路板7aにより構成されるガス流路に沿って流れ、そのうち電極側の流路を流れる燃料ガ

2

スが燃料極1で電極反応を行う。同様に酸化剤ガス（ $AI R$ 、 CO_2 ）は、矢印9に示す方向に供給され、流路板7bにより構成されるガス流路に沿って流れ、そのうち電極側のガス流路を流れる酸化剤ガスが酸化剤極2で電極反応を行う。また、酸化剤ガスは、電池冷却のための冷却ガスとしての役割も果たしている。（以下燃料ガスと酸化剤ガスを総称して「ガス」とする。）

【0007】 しかし、上記の溶融炭酸塩型燃料電池に、ガスを供給する場合には、流路板により構成される電極側のガス流路を通るガスのみが電極反応に使われ、セパレータ側のガス流路を流れるガスは電極反応に使われることなく通過していた。

【0008】 また各電極では、電極全体にガスが回り込む前に、電極のガス流路入口付近でガスと電極との電極反応が起こり、ガスのお大半が消費されてしまい、ガス流路入口付近と比較して、ガス流路方向に向うにしたがってガス濃度が低下し、電極反応は起こりにくくなる。つまり、電極の全面積でガスが電極反応に寄与する事は困難であった。

【0009】 また、セル上の温度分布を見ると、燃料ガス流路の入口付近では燃料ガス濃度が高く、電極反応が起こりやすいのでセル温度が高くなる。しかし酸化剤ガスは、冷却ガスとして作用するので、酸化剤ガス流路の入口付近は低い温度となる。したがって、セル全体としては、燃料ガス流路の入口に近く、かつ酸化剤ガス流路入口から遠い部分が最も温度が高くなり、逆に、燃料ガス流路入口に遠く、かつ酸化剤ガス流路入口から近い部分が最も温度が低くなるという不均一な温度分布になる。燃料電池において温度が高い部分は、熱応力が大きくなり、電池の信頼性の低下の原因となる。また、部分的に電解質の拡散が起こり電池寿命の低下の原因になる。

【0010】 上記の問題を解決するために、従来は溶融炭酸塩型燃料電池のガス流路構造において、波板状の流路板を少なくとも2個に分離し、ガス流れ方向に直交するようにずらして設置し、電極側のガス流路がセパレータ側の流路に接続し、セパレータ側のガス流路が電極側の流路に接続する方法が特開平1-140560号公報に開示されている。

【0011】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、上述したガス流路構造では少なくとも2個に分離した波板状の流路板をセパレータに溶接したり、ろう付けするなどの固定工程があり、製造工程が増え、コスト高になってしまふ。

【0012】 本発明は上記の問題に鑑み、電極表面のガス濃度ができるだけ均一となり、また、温度分布をさらに均一にし、かつ製造時に加工しやすいガス流路構造を有する溶融炭酸塩型燃料電池を提供すること目的とする。

[発明の構成]

【0013】

【課題を解決するための手段】上記の課題は、流路板のガス流路入口から所望距離離れた位置にセパレータ側の流路と電極側の流路をつなぐ開孔部を設け、かつガスの流れる方向において開孔部より後方のセパレータ側のガス流路を閉塞することにより達成される。

【0014】すなわち、本発明は燃料極と、前記燃料極に対向する酸化剤極と、前記燃料極と前記酸化剤極との間に介在する電解質板とを備える複数の単位セルと；前記単位セルを積層する際に各単位セル間に介在するセパレータと；前記セパレータと対向する電極と前記セパレータの間にガス流路を形成し、前記セパレータ側のガス流路と電極側のガス流路を分離する流路板とを備える溶融炭酸塩型燃料電池において、前記流路板がセパレータ側のガス流路と電極側のガス流路をつなぐ開孔部を有し、かつ、ガス流れ方向に対しセパレータ側のガス流路の前記開孔部より後方が閉塞されていることを特徴とする溶融炭酸塩型燃料電池である。

【0015】本発明の燃料電池におけるガス流路構造は、酸化剤側ガス流路と燃料側側のガス流路のどちらかに適用すれば効果は得られる。しかし実用上好ましくは、燃料側側に適用する方がよい。それは燃料ガス中の水素濃度が、酸化剤ガスの電極反応成分に比べて濃度が低くても、燃料ガス中の水素を有効に利用することができるためである。さらに好ましくは酸化剤側ガス流路と燃料側側のガス流路両方に適用するのがよい。それにより、ガスも有効に利用でき、電極上の温度分布も均一となり電池性能が向上に適している。

【0016】一方、本発明の燃料電池において流路板を閉塞する際は、その閉塞方法を問わない。金属や、セラミックスなどのような燃料電池の運転温度での耐熱性を有する物質を充填することにより閉塞しても良いし、流路板の一部を折ることにより閉塞しても良い。流路板の一部を折ることにより閉塞部を形成したほうが簡便で、製造工程も少なく、製法上有利である。

【0017】また、流路板を閉塞する位置は、ガス流れ方向に対しセパレータ側のガス流路の開孔部より後方であれば、流路板中のどこでも良いが、開孔部の直後を閉塞するほうが、ガスがセパレータ側流路から電極側の流路に移動しやすいので好ましい。

【0018】

【作用】本発明の溶融炭酸塩型燃料電池においては、ガス流路入口において供給される燃料ガスまたは酸化剤ガスの半分は、電極側ガス流路を流れ、残りの半分はセパレータ側のガス流路を流れる。電極側のガス流路を流れるガスは、電極表面で電気化学反応を生じ、ガスの成分は途中でほとんどが消費される。一方セパレータ側のガス流路を流れるガスは、電気化学反応には関与せず、組成変化を生じずに流れる。しかし、流路板の、ガス流路

入口からある距離離れた位置に設けられたセパレータ側のガス流路と電極側のガス流路をつなぐ開孔部からセパレータ側を流れていた未反応のガスが電極側のガス流路に流れだす。それにより、電極側のガス流路のガスの反応成分の濃度が上がり、電極反応が起こりやすくなる。また、セパレータ側の流路の開孔部より後方は閉塞されていることにより、セパレータ側のガスの出口は開孔部のみになるので、結果としてセパレータ側流路から電極側流路へガスが流出しやすくなる。ここで閉塞部は、必ずしも完全に密閉閉塞されていなくとも本発明の効果を得ることができる。

【0019】以上のようなガス流路構造を設けることにより、ガス流路の長手方向における濃度不均一による電極表面のガス濃度低下が改善され、電極とガスを有効に使い、電池性能を向上させることができる。

【0020】また、本発明においては、流路板に開孔部と閉塞部を設ける際には、2個以上の流路板をセパレータへの接着などの固定工程が必要ないため、製造上有利である。

【0021】また、本発明においては、流路板のガス流路入口から開孔部までの距離を任意に変化させて設けても良い。開孔部を設けガスが新しく導入されるころは、ガス濃度が高くなり、電極反応が起こりやすくなるので温度も高くなる。ゆえに任意の位置に開孔部を設けることにより、セル上の温度分布を平均化することができる。電池の高性能化を図ることができる。以下の実施例により本発明を詳しく説明する。

【0022】

【実施例】

(実施例1)

【0023】以下に示すようなガス流路構造を燃料側ガス流路および酸化剤側ガス流路に持つ溶融炭酸塩型燃料電池の単位セルを作成した。単位セルの面積は $1 \times 10^4 \text{ cm}^2$ の正方形であった。

【0024】図1は本発明の実施例による溶融炭酸塩型燃料電池の燃料電極側のガス流路構造を示す斜視図である。図2は図1と同じガス流路構造を示し、図1の線A-A'で流路構造を切ったときの断面図である。図1および図2において、流路板10は従来の流路板に用いられているものと同様の金属の波状板である。流路板10の波状凸部の両側面のガス流路入口より50cmの位置に直径2mmφの開孔部11と開孔部12を設けた。さらにセパレータ13側のガス流路14bの出口を閉塞した。燃料ガスは矢印15に示す方向に供給した。

【0025】はじめ燃料ガスは流路板10と燃料極16（燃料極16は図2にのみ図示してある。）およびセパレータ13により区切られた燃料極16側のガス流路14aと、セパレータ側のガス流路14bを流れることになる。燃料ガスのうち約半分は、ガス流路14aを流れ、燃料極16において電気化学反応を生じ、ガス流路

14a内で水素が消費され、電極表面からは生成ガスである水と炭酸ガスを生じ、水素濃度は徐々に低くなる。しかしながら、残り半分の燃料ガスはガス流路14bを流れるため反応は起こらず、入口と同じ組成である。

【0026】燃料ガスの入口から50cmのところで、先のガス流路14bを流れたガスは開孔部11および開孔部12を出て今度は燃料極側ガス流路であるガス流路14aを流れる。このため、流路14aでいったん低くなったガス流路14aの水素ガス濃度は、再び上昇し、燃料極16で電気化学反応を行う。上記実施例は燃料極側ガス流路に適用した例について述べたが、酸化剤極側ガス流路にも同様に適用した。

【0027】本実施例で用いた流路板は次のように製造した。図3に本実施例で用いた流路板の一部の展開図を示す。流路板を作る際は、まず金属板を図3のようにガス流路となる開孔部11および開孔部12と、閉塞部となる凸部分17を有するように裁断した。閉塞部となる凸部分17はガス流路の断面の形状とした。その後上記に示すように裁断した金属板を波状にプレス加工した。そして凸部分17をガス流路を塞ぐように折り曲げることにより閉塞部とした。上記のように流路板に閉塞部と開孔部を設けることにより、各電極上のガスの濃度分布が改善されることになり、電池性能が向上する。上記の熔融炭酸塩型燃料電池を用いて650℃において発電試験を行った。図4にセルのガス流路入口からの距離と電流密度の関係を示す。

【0028】図4に示すように、ガスの流れ方向に対して、ガス濃度の低下により電流密度は減少するが、流路途中に設けられた開孔部からセパレータ側を流れた未反応のガスが流れ出ることにより、ガス濃度が上昇し、電極反応が起こりやすくなる。それにより電流密度が大きくなり、性能が向上することになる。

(実施例2)

【0029】燃料側ガス流路および酸化剤側ガス流路を構成する流路板が、以下に示す構造であり、その他の条件を実施例1と同様にした熔融炭酸塩型燃料電池の単位セルを用い、650℃において発電試験を行った。流路板は波状板の波状凸部側面に長さ5cm、幅2mmの開孔部を設け、さらにガス出口側の凸部分の一部を閉塞してある。実施例1と同様に、閉塞部は流路板となる波状板の端の凸部分を折り曲げることにより作られている。図5に上記の熔融炭酸塩型燃料電池を用いて発電試験を行った際の、セルにおけるガス流路入口からの距離と電流密度の関係を示す。

【0030】実施例1と同様に、開孔部を設けたことにより、電流密度が途中で上昇し、性能が向上している。また、実施例1に比べて開孔部が大きいので、セパレータ側から電極側に流出する未反応のガスが多くなるため、電流密度の低下は、実施例1に比べて小さくなっている。

(比較例1)

【0031】燃料極側のガス流路および酸化剤極側のガス流路を構成する流路板に開孔部と閉塞部をともに持たない波状板を用い、その他の条件が実施例1と同様である熔融炭酸塩型燃料電池の単位セルにおいて、650℃で発電試験を行った。図6にこのときのセルにおけるガス流路入口からの距離と電流密度の関係を示す。図6に示すように、ガスの流れ方向に対してガス濃度の低下により電流密度は減少し、回復することはない。実施例1及び実施例2は、ともに比較例1に比べると平均の電流密度が大きくなり、電池性能が向上している。また、本実施例で用いた流路板は、セパレータに溶接や接着などの固定工程が不要なので、製造上有利である。

【0032】また、別の流路板加工法を下記に示す。図7に流路板の展開図を示す。まず金属板に図7に示すような、一部を残した切り目を入れ、図7の線B-B'が凸部頂上となるように波状にプレス加工した。そして、切り目で囲まれた部分18を押し入れた。図8は以上の方法で加工した流路板の一部を示す斜視図である。上記の方法によれば、図8に示すように開孔部と閉塞部とを同時に作ることができる。

【0033】一方、実施例1および実施例2に示した流路板を応用した流路板を上方から見た平面図を図9に示す。図9で19はセパレータ側のガス流路を示し、20は電極側のガス流路を示す。セパレータ側のガス流路19および電極側のガス流路は板の凹凸によって作られている。ガス入口から出口に近づくにしたがいセパレータ側流路20は狭くなり、電極側流路20は広がっている。開孔部21は電極側ガス流路を形成している流路板の凸部側面に設けられている。また、セパレータ側のガス流路19の出口は閉塞されている。

【0034】矢印の方向にガスが供給されたとき、セパレータ側流路19を流れたガスは、開孔部から電極側流路20に移動する。電極側流路20はセパレータ側流路19からガスが流れ込むことにより、ガス流量が増えるが、上記の構造にすることにより、電極側流路のガス圧力が高くなり、セパレータ側流路からのガスの移動がしやすくなる。

【0035】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、熔融炭酸塩型燃料電池において、ガス流路内の長手方向における濃度不均一による電極表面のガス濃度低下および電流密度不均一に伴う電流密度分布不均一および温度分布不均一を改善することができ、熔融炭酸塩型燃料電池の高性能化、長寿命化に極めて有利となる。また、流路板の製造も容易に行うことができ、量産化および低コスト化に適している。

【図面の簡単な説明】

【図1】 実施例1に係る熔融炭酸塩型燃料電池のガス流路構造を示す斜視図。

7

8

【図2】 実施例1に係る熔融炭酸塩型燃料電池のガス流路構造を示す断面図。

【図3】 実施例1および実施例2で用いた流路板の展開図。

【図4】 実施例1におけるセルのガス流路入口からの距離と電流密度の関係。

【図5】 実施例2におけるセルのガス流路入口からの距離と電流密度の関係。

【図6】 比較例1におけるセルのガス流路入口からの距離と電流密度の関係。

【図7】 流路板の展開図。

【図8】 流路板の一部を示す斜視図。流路板の展開図。

【図9】 流路板を応用した流路板の平面図。

【図10】 熔融炭酸塩型燃料電池の基本構成。

【符号の説明】

- 1…燃料極（陰極）
2…酸化剤極（陽極）
3…電解質板

4…セパレータ

5 a, 5 b…エッジシール板

6 a, 6 b…孔開き板

7 a, 7 b…流路板

8…燃料ガス供給方向

9…酸化剤ガス供給方向

10…流路板

11…開孔部

12…開孔部

10 13…セパレータ

14…ガス流路

15…燃料ガス供給方向

16…燃料極

17…凸部分

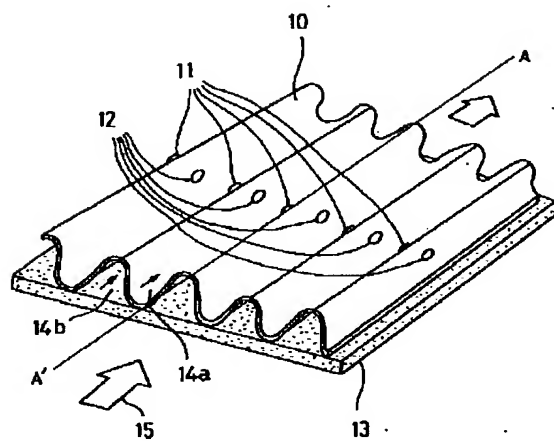
18…切り目で囲まれた部分

19…セパレータ側のガス流路

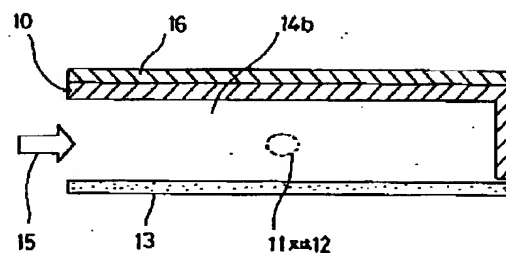
20…電極側のガス流路

21…開孔部

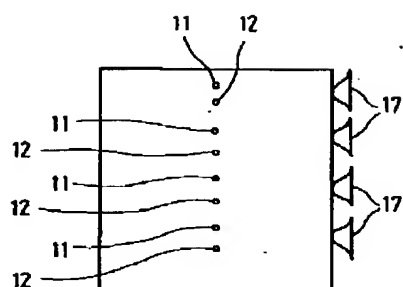
【図1】



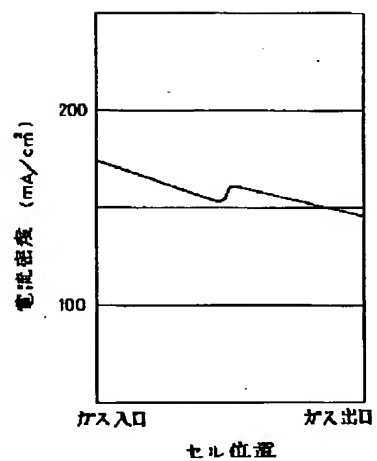
【図2】



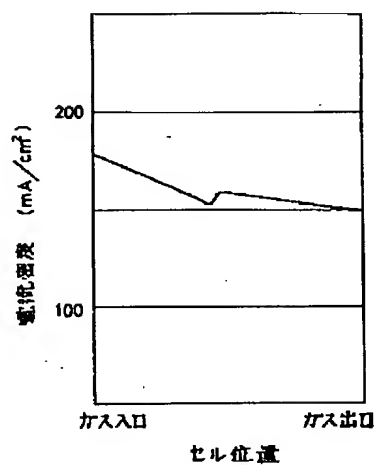
【図3】



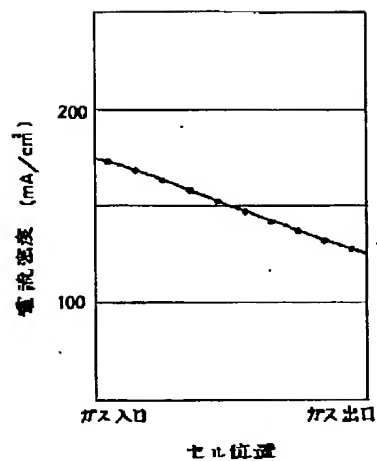
【図4】



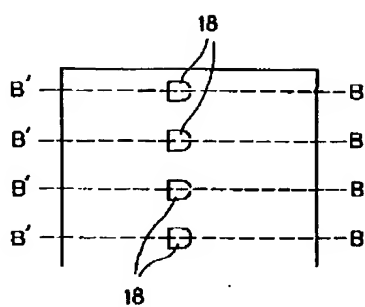
【図5】



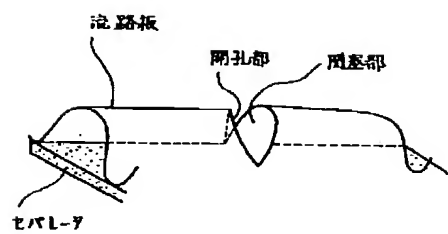
【図6】



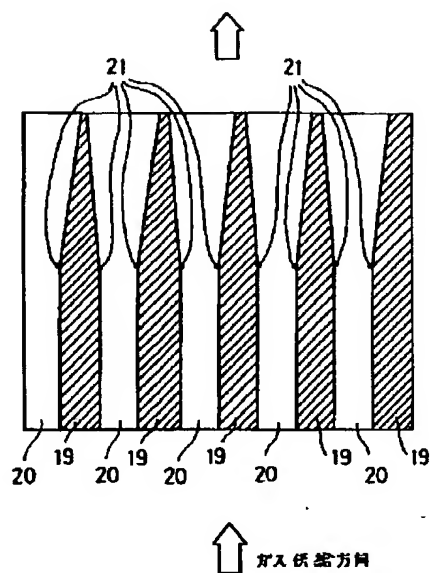
【図7】



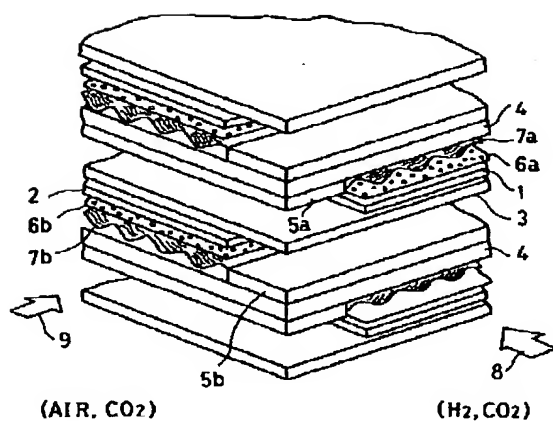
【図8】



【図9】



【図10】

(AIR, CO₂)(H₂, CO₂)

フロントページの続き

(72)発明者 中川 和明

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株
式会社東芝総合研究所内